

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN(11)Publication number : **62-104886**(43)Date of publication of application : **15.05.1987**

(51)Int.Cl.

C09J 3/14
// C08F265/06
C08L 33/02(21)Application number : **60-244993**(71)Applicant : **NITTO ELECTRIC IND CO LTD**(22)Date of filing : **31.10.1985**(72)Inventor : **MOROISHI YUTAKA**
SUGI TETSUJI
NODA KEN
SATSUMA MICHIO**(54) PRODUCTION OF PRESSURE-SENSITIVE ADHESIVE COMPOSITION DISPERSED IN WATER****(57)Abstract:**

PURPOSE: To obtain the titled composition having excellent adhesivity, cohesivity, anti-repulsion property, etc., by polymerizing an acrylic monomer mixture in the absence of an emulsifier to obtain an aqueous dispersion having a specific polymer concentration and adding the above monomer mixture and water dropwise to the dispersion keeping the above concentration thereby polymerizing the monomer mixture.

CONSTITUTION: A monomer mixture consisting of (A) 90W99.5(wt)% main monomer composed mainly of 1W14C alkyl (meth)acrylate (preferably ethyl acrylate, etc.) and (B) 10W0.5% ethylenic unsaturated carboxylic acid (e.g. acrylic acid) is polymerized in an aqueous medium without using an emulsifier to obtain an aqueous dispersion having a polymer concentration of 50W60%. 1W3pts.wt. of the above monomer mixture based on 1pt.wt. of the polymer in the aqueous dispersion is continuously dripped to the dispersion together with a specific amount of water in a manner to maintain the overall polymer concentration to 50W65% and is polymerized to obtain then objective composition. Usually, potassium persulfate, etc. is used as a water-soluble polymerization initiator.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2000 Japan Patent Office

L37 ANSWER 89 OF 125 HCA COPYRIGHT 2001 ACS
AN 107:177622 HCA
TI Water-dispersed pressure-sensitive
adhesive compositions
IN Moroishi, Yutaka; Sugii, Tetsuji; Noda, Ken; Satsuma, Michio
PA Nitto Electric Industrial Co., Ltd., Japan
SO Jpn. Kokai Tokkyo Koho, 6 pp.
CODEN: JKXXAF

DT Patent
LA Japanese
IC ICM C09J003-14
ICA C08F265-06; C08L033-02
CC 38-3 (Plastics Fabrication and Uses)
Section cross-reference(s): 35

FAN.CNT 1

	PATENT NO.	KIND	DATE	APPLICATION NO.	DATE
	-----	---	-----	-----	-----
PI	JP 62104886	A2	19870515	JP 1985-244993	19851031
	JP 05074634	B4	19931018		
AB	The title compns. with good moisture resistance and high adhesive strength are prepd. by polymg. a mixt. of 90-99.5% monomers mainly C1-14 alkyl (meth)acrylates and 0.5-10% ethylenically unsatd. carboxylic acids in aq. media free of emulsifying agents to give 50-65% polymer content, and further polymg. with continuous dropwise addn. 1-3 times previous amt. of the same monomer mixts. and H2O to give a dispersion with polymer content 50-65%. Thus, 120 parts 53:45:2 2-ethylhexyl acrylate -Et acrylate acrylic acid mixt. was added over 3 h to 100 parts H2O contg. 0.6 part K2S2O8 at 80.degree. under N until 54% polymer content, mixed over 5 h with 240 parts of the same monomer mixt. and 200 parts H2O at 80.degree., and held 2 h at 80.degree. to give an aq. dispersion with polymer content 54.5% and having adhesive strength 880 g/20 mm, cohesive strength (time for two bonded Bakelite plates to sep. under 1-kg load) .gtoreq.1000 and 500 min, at 40 and 80.degree., and repelling resistance of 0.3-mm Al plate adhered on 50 mm cylinder (after 24 h at 40.degree.) 0.2 mm, vs. 860, 700, 50, and 1.5, resp., for an adhesive prepd. in one step.				
ST	water dispersion pressure sensitive adhesive; acrylic pressure sensitive adhesive; two stage polymn acrylic adhesive; moisture resistance acrylic adhesive dispersion				
IT	Water-resistant materials (pressure-sensitive adhesive, aq . dispersions of acrylic copolymers as)				
IT	Adhesives (pressure-sensitive, acrylic copolymer aq . dispersions, with good moisture resistance and high adhesive strength, by two-stage polymn. without emulsifying agent)				
IT	Polymerization (two-stage, of acrylic monomers without emulsifiers, for pressure-sensitive adhesives)				
IT	25085-41-0, Acrylic acid-butyl acrylate-vinyl acetate copolymer 37685-40-8, Acrylic acid -ethyl acrylate-2-ethylhexyl acrylate copolymer RL: USES (Uses) (aq. dispersions, for pressure-sensitive adhesives, by two-stage polymn. without emulsifying agent)				

⑬ 日本国特許庁(JP)

⑭ 特許出願公開

⑯ 公開特許公報(A)

昭62-104886

⑰ Int.Cl.⁴ 識別記号 庁内整理番号 ⑱ 公開 昭和62年(1987)5月15日
 C 09 J 3/14 J D H 7102-4 J
 // C 08 F 265/06 M Q M
 C 08 L 33/02 J D D 7167-4 J 審査請求 未請求 発明の数 1 (全6頁)

⑲ 発明の名称 水分散型感圧性接着剤組成物の製造法

⑳ 特 願 昭60-244993

㉑ 出 願 昭60(1985)10月31日

㉒ 発 明 者 諸 石 裕 茨木市下穂積1丁目1番2号 日東電気工業株式会社内
 ㉓ 発 明 者 杉 井 哲 次 茨木市下穂積1丁目1番2号 日東電気工業株式会社内
 ㉔ 発 明 者 野 田 謙 茨木市下穂積1丁目1番2号 日東電気工業株式会社内
 ㉕ 発 明 者 薩 摩 道 夫 茨木市下穂積1丁目1番2号 日東電気工業株式会社内
 ㉖ 出 願 人 日東電気工業株式会社 茨木市下穂積1丁目1番2号
 ㉗ 代 理 人 弁理士 祢宜元 邦夫

明 細 書

1. 発明の名称

水分散型感圧性接着剤組成物の製造法

2. 特許請求の範囲

(1) アルキル基の炭素数が1～14個の(メタ)

アクリル酸アルキルエステルを主成分とする主単
 量体90～99.5重量%とエチレン性不飽和カル
 ボン酸10～0.5重量%との単量体混合物を、水
 媒体中乳化剤を用いないで混合させて得られるポ
 リマー濃度が50～65重量%の水分散液に、こ
 の水分散液のポリマーに対して重量比で1～3倍
 量となる割合の前記同様の単量体混合物を、これ
 と上記水分散液のポリマーとの合計濃度が水分散
 液中50～65重量%の範囲を維持するように、
 所定量の水とともに連続的に滴下して混合を行わ
 せることを特徴とする水分散型感圧性接着剤組成
 物の製造法。

3. 発明の詳細な説明

(産業上の利用分野)

この発明はアクリル系の水分散型感圧性接着剤

組成物の製造法に関する。

〔従来の技術〕

近年、アクリル系感圧性接着剤は、そのすぐれ
 た接着特性ないし耐久性から、従来の天然ゴム系、
 合成ゴム系の感圧性接着剤に代わって広く普及し
 てきた。また、この種の接着剤の中でも、最近で
 は有機溶剤を使用しない水分散型のものが省資源、
 環境衛生などの観点から研究開発されている。

このような水分散型の接着剤は一般に乳化重合
 法により調製されている。すなわち、(メタ)ア
 クリル酸アルキルエステルを必要に応じてアクリ
 ル酸、スチレン、酢酸ビニルなどの改質用単量体
 とともに水媒体中で乳化重合させることにより調
 製されており、この方法で得られる室温で粘着性
 を有するアクリル系ポリマーは、層状重合で得ら
 れるポリマーに較べて比較的大きな分子量を有す
 るものとなるため、感圧性接着剤として比較的高
 い凝集力が得られることが知られている。

〔発明が解決しようとする問題点〕

しかるに、上記従来のアクリル系の水分散型接

特開昭62-104886(2)

着剤は、これを高度の凝集力が望まれる用途に適用する場合にはなお満足できるものとはいえず、また接着箇所が比較的高温下におかれるときには、凝集力が著しく低下し、ほとんど使用に供しえなかつた。そこで、この種の接着剤の凝集力をさらに向上させるために、乳化重合後の重合体エマルジョンに有機溶剤タイプにおけるのと同様の外部架橋剤、たとえばメラミン化合物、エポキシ化合物、金属塩などを配合する試みがなされてきた。

ところが、このような改良手段では、架橋剤の種類ないし使用量の選択に煩わしさがあつた、また架橋のための熱エネルギーも無視できないなど生産性の面での問題があるうえに、一般に架橋が不均一となつて架橋の程度に比べて凝集力がそれほど大きくなり、また逆に凝集力を大きくできたとしてもこれに伴つて接着力の低下がみられ、結局高接着力かつ高凝集力を有するような感圧性接着剤組成物を得ることは難しかつた。

さらに、上記の如き手段にて凝集力を大きくし

た場合、凝集力の低下とは別に接着剤としての耐反発性に劣つたものとなるという問題もあつた。すなわち、たとえば曲面を待った被着体に金属板やプラスチック板などを屈曲状態に接着させる用途などにあつては、屈曲された金属板やプラスチック板に復元力が働くため、この復元力に抗しようとする耐反発性にすぐれたものであることが要求され、この耐反発性は接着力と凝集力とのバランス特性にて表されるものであるが、このような耐反発性を高度に満足させることはできなかつたのである。

このように、前記従来のアクリル系の水分散型接着剤では、接着力とともに凝集力を高度に満足し、しかも耐反発性にすぐれたものを得にくいという問題があつた。その上、この種の接着剤は、乳化重合時に重合体粒子の安定化のために乳化剤を使用しているため、この乳化剤が接着剤組成物中に混入し、その結果耐湿、耐水性に乏しいものとなつて接着特性に悪影響をおよぼす問題をも有していた。

したがつて、この発明は、上記接着特性低下の原因となる乳化剤を一切含まない水分散型感圧性接着剤組成物であつて、かつ外部架橋剤をあえて配合しなくても高接着力と高凝集力とを兼得し、その上耐反発性にすぐれたアクリル系の水分散型の製造法の感圧性接着剤組成物を提供することを目的とする。

〔問題点を解決するための手段〕

この発明者らは、上記の目的を達成するために鋭意検討した結果、感圧接着性ポリマーを付与するアクリル系の単量体混合物を乳化剤を用いることなく水媒体中で重合させる場合、ポリマー濃度が65重量%までであれば比較的良好な重合安定性が得られるが、このポリマー濃度の水分散液は接着力を満足しても凝集力が不足する欠点があること、一方ポリマー濃度がたとえば70重量%となるような高濃度の水分散液とすると重合安定性が極端に損なわれて凝集物が多く生成する問題があるが、その反面前記65重量%までのポリマー濃度としたものに比し凝集力の大きな接着剤組成物が得られるものであることを知つた。

そこで、上記相反する問題を解決するべく、ポリマー濃度が65重量%までとされた水分散液を調製したのちに、これにさらに前記同様の単量体混合物を連続的に滴下して第二段目の重合を行わせるようにしてみたところ、前記ポリマー濃度が70重量%とされた水分散液の場合と同様に、凝集力の改善効果は認められたが、この場合単量体混合物の滴下に伴つてやはり重合安定性が大きく損なわれる問題があつた。

ところが、上記第二段目の重合を行う際に、単量体混合物とともに所定量の水を滴下して、初期の水分散液のポリマー濃度をほぼ維持するように重合反応を進めるようにしたときには、重合安定性の低下が防がれて重合中での凝集物の多量発生を防止できるとともに、その理由は必ずしも明らかではないが、上記単量体混合物だけを滴下する場合と同様の凝集力の改善効果が認められ、しかも接着力や耐反発性の良好な水分散液が得られるという事実が判明した。

この発明は、以上の知見をもとにしてさらに検

特開昭62-104886(3)

討を加えた結果、見いだされたものであり、その要旨とするところは、アルキル基の炭素数が1～14個の(メタ)アクリル酸アルキルエステルを主成分とする主単量体90～99.5重量%とエチレン性不飽和カルボン酸10～0.5重量%との単量体混合物を水媒体中乳化剤を用いずに重合させて得られるポリマー濃度が50～65重量%の水分散液に、この水分散液のポリマーに対して重量比で1～3倍量となる割合の前記同様の単量体混合物を、これと上記水分散液のポリマーとの合計濃度が水分散液中50～65重量%の範囲を維持するように、所定量の水とともに連続的に滴下して重合を行わせることを特徴とする水分散型感圧性接着剤組成物の製造法にある。

すなわち、上記この発明の方法によれば、乳化剤を用いずに重合手法を採用しているにもかかわらず、凝集物の少ない安定な水分散液を得ることができ、しかもこの水分散液は乳化剤を含まないため耐湿、耐水性にすぐれ、またその凝集力が大きくて接着力や耐反発性も満足するすぐれた感圧

性接着剤組成物となるという特徴を有するものである。なお、この明細書において、(メタ)アクリル酸とあるはアクリル酸および/またはメタクリル酸を、(メタ)アクリル酸アルキルエステルとあるはアクリル酸アルキルエステルおよび/またはメタクリル酸アルキルエステルを、(メタ)アクリレートとあるはアクリレートおよび/またはメタクリレートを、それぞれ意味する。

〔発明の構成・作用〕

この発明においては、まずアクリル系の単量体混合物を用いて、これを水媒体中乳化剤を用いずに重合させることにより、ポリマー濃度が50～65重量%の水分散液を調製する。ここで用いる上記の単量体混合物とは、アルキル基の炭素数が1～14個の(メタ)アクリル酸アルキルエステルを主成分とする主単量体と、エチレン性不飽和カルボン酸とからなるものである。

性接着剤組成物の製造法にある。

し、また10重量%を超えてしまうと重合安定性が損なわれて重合中に凝集物が多く生成するため、不適当である。

〔発明の構成・作用〕

このような主単量体とエチレン性不飽和カルボン酸とからなる単量体混合物は、いうまでもなく、そのコポリマーが感圧接着性を示すようにガラス転移点が250℃以下となるような組成とされる。このような組成とされることにより、高凝集力であるとともに高接着力であり、また耐反発性の良好な感圧性接着剤組成物の調製が可能となる。

この単量体混合物の水媒体中での重合は、通常水に重合開始剤としての過硫酸アンモニウム、過硫酸カリウムの如き過硫酸塩などからなる水溶性開始剤を添加溶解させておき、これに単量体混合物を所定の滴下速度で滴下して、通常80～80℃で反応させるという方法で行うのがよい。単量体混合物を最初から一度に仕込む方法では、重合時の発熱が大きすぎ、生産管理上の問題があるため、あまり好ましくない。

また、上記の如き水溶性開始剤を用いたときに

また、上記の如き水溶性開始剤を用いたときに

また、上記の如き水溶性開始剤を用いたときに

また、上記の如き水溶性開始剤を用いたときに

特開昭62-104886(4)

は、その分解により生成するイオン性末端基が水媒体中での重合安定性および重合後のエマルジョンの安定性に寄与するため、乳化剤を用いなくとも重合中での凝集物の多重生成を有効に防止することができる。

このようにして得られる水分散液は、単量体混合物の滴下量の調節により、そのポリマー濃度が50～65重量%の範囲となるように設定されていることが必要である。このポリマー濃度が65重量%を超えてしまう高い濃度となると、乳化剤を用いていないことにより、重合安定性が大きく阻害されて、重合中に多量の凝集物が生成するため、不適当である。また、上記ポリマー濃度が50重量%未満となると、その後第二段目の重合を行っても、つまりこの発明の方法を採用しても、凝集力の改善効果はそれほど認められなくなるため、やはり不適当である。

この発明においては、かかる特定範囲のポリマー濃度を有する水分散液に、さらに前記同様の単量体混合物を水とともに連続的に滴下して第二段

目以降の重合を行う。ここで用いる単量体混合物は、前記水分散液を得るために用いた単量体混合物と同様のものが用いられるが、その組成比までもが同一である必要は特にない。

この第二段目の重合で滴下する単量体混合物の使用量は、前記水分散液のポリマー、つまりこのポリマーを得るために用いた単量体混合物に対して重量比で1～3倍量となる割合とする。1倍量に満たないときは、凝集力の改善効果が低くなり、また3倍量を超えるとこれと同時に滴下する水との合計量が著しく多くなるため、重合系内の熱伝導に変化をきたしたり攪拌が困難となるなどの問題が生じ、重合操作上不利となり、いずれも不適当である。

単量体混合物とともに滴下する水の量は、滴下単量体混合物と前記水分散液中のポリマー、つまりこのポリマーを得るために用いた単量体混合物との合計濃度が水分散液中50～65重量%の範囲を維持しうるような割合とされる。上記濃度が65重量%を超える少量の水では、重合安定性が

低下するため不適当であり、また50重量%未満となる多量の水では、凝集力の改善効果が低くなったり、さらに滴下する単量体混合物が水分散液の表面に滞留するなどの不都合があるため、やはり不適当である。

第二段目の重合は、前記水分散液を調製するために用いた重合開始剤の残りを利用して行ってもよいし、新たに上記と同様の重合開始剤を添加して行うようにしてもよい。重合温度は、前記水分散液を調製する場合と同様の温度とすればよい。

このような第二段目の重合により得られる水分散液は、乳化剤を用いていないにもかかわらず凝集物の少ない安定な性状を呈し、乳化剤を含まないことから耐湿、耐水性にすぐれた感圧性接着剤組成物となり、しかもこの組成物は良好な接着力とともに改善された凝集力を有し、その上耐反粘性にもすぐれるという特徴を有している。

したがって、この発明においては、上記の方法にて得られる水分散液をそのまま水分散性感圧性接着剤組成物として使用に供することができるが、

この組成物には必要に応じて着色剤、充てん剤、老化防止剤、粘着付与剤などの従来公知の添加剤を適宜配合することができる。その配合量は通常の量でよい。また、上記組成物はこれ単独で高接着力であつ高凝集力を発揮するが、凝集力のさらに一層の増大を望むならこの発明の特徴を損なわない範囲内で従来公知の各種外部架橋剤を配合しても差し支えない。

〔発明の効果〕

以上のように、この発明の方法によれば、乳化剤を用いていないにもかかわらず水分散液の性状の安定した感圧性接着剤組成物を製造できるうえに、乳化剤を含まないため乳化剤に起因した耐湿、耐水性の低下に基づく接着特性の劣化がみられず、しかも外部架橋剤をあえて配合しなくても高接着力であつ高凝集力を発揮し、特に高温下での凝集力の低下がみられず、その上耐反粘性に非常にすぐれた水分散性感圧性接着剤組成物を得ることができ、この組成物は一般の感圧性接着テープ、シート、ラベル類などの用途のほか、耐反粘性が特

特開昭62-104886(5)

に要求される用途に対しても非常に有用である。

〔実施例〕

以下に、この発明の実施例を記載してより具体的に説明する。なお、以下において部とあるは重量部を、％とあるは重量％を、それぞれ意味する。また、接着力、凝集力、耐反跳性およびゲル分率は、下記の方法にて測定したものである。

〈接着力〉

25 μ m厚のポリエステルフィルムの両面に感圧性接着剤組成物を乾燥後の厚みが片面50 μ mとなるように塗布し、100℃で3分間乾燥して両面接着テープをつくり、JIS Z-1528により180度引き剥がし接着力(2/20mm幅)を測定した。

〈凝集力〉

接着力試験と同様の両面接着テープをつくり、これを2枚のベークライト板に25mm×25mmの接着面積で貼り合わせ、40℃および80℃で1kgの荷重をかけてベークライト板が落下するまでの時間(分)を測定した。

記と同様の単量体混合物240部と、蒸留水200部とを、80℃の反応温度を保ちながら連続的に5時間かけて滴下し、滴下後80℃に2時間保持して、第二段目の重合を行つた。

このようにして得られた水分散液のポリマー濃度は54.5％で、全ポリマーに対する凝集物の割合は僅かに0.01％であり、この水分散液をそのままこの発明に係る水分散型感圧性接着剤組成物とした。

比較例1

実施例1と同様の反応器に、過硫酸カリウム0.6部を溶解してなる蒸留水100部を投入し、窒素気流下で80℃に加熱したのち、実施例1と同じ単量体混合物120部を、3時間かけて連続的に滴下し、滴下後さらに80℃で2時間保持することにより、凝集物量が全ポリマーに対して0.01％で、ポリマー濃度が54％の水分散液を得、これを水分散型感圧性接着剤組成物とした。

比較例2

単量体混合物の使用量を360部とした以外は、

〈耐反跳性〉

0.3mm厚のアルミニウム板の片面に感圧性接着剤組成物を乾燥後の厚みが50 μ mとなるように塗布し、100℃で3分間乾燥したのち、10mm×80mmの大きさに切断して試験片をつくり、この試験片を50mm径のアルミニウム製円柱に屈曲して貼りつけ、その後40℃で24時間保存したときに、試験片が円柱から浮き上がった距離(mm)を測定した。

実施例1

温度計、攪拌機、窒素導入管および逆流冷却管を備えた反応器内に、過硫酸カリウム0.6部を溶解してなる蒸留水100部を投入し、窒素気流下で80℃に加熱したのち、アクリル酸2-エチルヘキシル53％とアクリル酸エチル45％とアクリル酸2％とからなる単量体混合物120部を、3時間かけて連続的に滴下して重合反応を行うことにより、ポリマー濃度が54％の水分散液を調製した。

つぎに、この水分散液に、窒素気流下さらに上

比較例1と同様にして重合反応を行つてみたが、重合途中で多量の凝集物が生成して重合反応を最後まで進めることはできなかった。

実施例2

実施例1と同様の反応器内に、過硫酸アンモニウム0.3部を溶解してなる蒸留水100部を投入し、窒素気流下で80℃に加熱したのち、アクリル酸n-ブチル88％と酢酸ビニル10％とアクリル酸2％とからなる単量体混合物150部を、5時間かけて連続的に滴下して重合反応を行うことにより、ポリマー濃度が60％の水分散液を調製した。

つぎに、この水分散液に、窒素気流下80℃で、上記と同様の単量体混合物225部と、過硫酸アンモニウム0.45部を溶解してなる蒸留水150部とを、5時間かけて連続的に滴下し、滴下後80℃に2時間保持して、第二段目の重合を行つた。

このようにして得られた水分散液のポリマー濃度は60％で、全ポリマーに対する凝集物の割合は僅かに0.02％であり、この水分散液をそのま

特開昭62-104886 (B)

まこの発明に係る水分散型感圧性接着剤組成物とした。

以上の実施例1,2および比較例1の各接着剤組成物の接着力、凝集力および耐反発性を調べた結果は、下記の表1に示されるとおりであった。

い接着剤組成物であることが判る。

特許出願人 日東電気工業株式会社

代理人 弁理士 弥原元 邦夫



第 1 表

	接着力 (g/20mm幅)	凝集力(分)		耐反発性 (mm)
		40℃	80℃	
実施例1	880	1,000以上	500	0.2
比較例1	880	700	50	1.5
実施例2	1,010	1,000以上	600	0.1

上記の結果から明らかなように、この発明の方法によれば、乳化剤を用いていないにもかかわらず凝集物の少ない安定な水分散型感圧性接着剤組成物を製造でき、この組成物は、高接着力でかつ高凝集力を有し、その上耐反発性に非常にすぐれたものであり、乳化剤を含まないため耐湿、耐水性にすぐれることと相俟つて実用価値の極めて高

手 続 補 正 書

昭和60年12月21日

特 許 庁 長 官 殿

1. 事件の表示

特 願 昭 60-244993号

2. 発明の名称

水分散型感圧性接着剤組成物の製造法

3. 補正をする者

特許出願人

大阪府茨木市下穂田1丁目1番2号

(396) 日東電気工業株式会社

代表者 鎌 居 五 朗

4. 代理人

弁理士 530

大阪府 大阪市北区西天満4丁目9番8号
(第三西宝ビル別館)

弁理士 (7915) 弥原元 邦夫
電話 大阪 (06) 363-0641号

5. 補正命令の日付

自 発 的

6. 補正の対

明細書の「発明の詳細な説明」

7. 補正の内容

A. 明細書

(1) 第4頁第1行目:

「凝集力」とあるを「接着力」と訂正いたします。

特許出願人 日東電気工業株式会社

代理人 弁理士 弥原元 邦夫



方 式 註 冊 審 査 印



—790—